

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s): OSADA, Shoichi et al.

Application No.: 09/883276

Filed: June 19, 2001

For: SEMICONDUCTOR ENCAPSULATING EPOXY RESIN COMPOSITION AND  
SEMICONDUCTOR DEVICE

Group: 1744

Examiner: Lee

SAH #2 1.30.02



LETTER

Assistant Commissioner for Patents  
Box Patent Application  
Washington, D.C. 20231

June 19, 2001  
0171-0759P-SP

Sir:

Under the provisions of 35 USC 119 and 37 CFR 1.55(a), the applicant hereby claims the right of priority based on the following application(s):

Country

JAPAN

Application No.

2000-183054

Filed

06/19/00

A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to deposit Account No. 02-2448 for any additional fees required under 37 C.F.R. 1.16 or under 37 C.F.R. 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

By: \_\_\_\_\_

ANDREW D. MEIKLE

Reg. No. 32,868

P. O. Box 747

Falls Church, Virginia 22040-0747

Attachment  
(703) 205-8000  
/rem

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

OSADA, Shoichi et al.  
June 19, 2001  
Giren, H. H. H.  
Kolosen, G. H.  
703-205-1110  
171-759p  
10f1

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application:

2000年 6月19日

出 願 番 号  
Application Number:

特願2000-183054

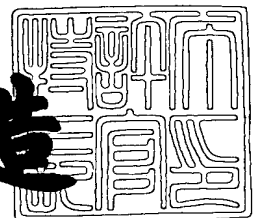
出 願 人  
Applicant(s):

信越化学工業株式会社

2001年 3月 9日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3015883

【書類名】	特許願
【整理番号】	12179
【提出日】	平成12年 6月19日
【あて先】	特許庁長官 近藤 隆彦 殿
【国際特許分類】	C08L 83/07
【発明者】	
【住所又は居所】	群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内
【氏名】	長田 将一
【発明者】	
【住所又は居所】	群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内
【氏名】	塩原 利夫
【発明者】	
【住所又は居所】	群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内
【氏名】	浅野 英一
【発明者】	
【住所又は居所】	群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内
【氏名】	富吉 和俊
【発明者】	
【住所又は居所】	群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内
【氏名】	青木 貴之
【発明者】	
【住所又は居所】	群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内
【氏名】	井野 茂樹

【特許出願人】

【識別番号】 000002060

【氏名又は名称】 信越化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100079304

【弁理士】

【氏名又は名称】 小島 隆司

【選任した代理人】

【識別番号】 100103595

【弁理士】

【氏名又は名称】 西川 裕子

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003207

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 半導体封止用エポキシ樹脂組成物及び半導体装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) エポキシ樹脂、  
(B) フェノール樹脂硬化剤、  
(C) モリブデン化合物、  
(D) 無機質充填剤

(A) , (B) 成分の合計量100重量部に対して300~900重量部を必須成分とするエポキシ樹脂組成物において、窒素原子を、(A) エポキシ樹脂と(B) フェノール樹脂硬化剤の総量に対し樹脂組成物中の窒素原子の含有量が1.5~20重量%である割合で含有させることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項2】 (B) フェノール樹脂硬化剤として、樹脂骨格中に窒素原子を含有するフェノール樹脂を用いたことを特徴とする請求項1記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項3】 (A) エポキシ樹脂として、樹脂骨格中に窒素原子を含有するエポキシ樹脂を用いたことを特徴とする請求項1又は2記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項4】 モリブデン化合物が、モリブデン酸亜鉛であることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項5】 モリブデン化合物が、無機質充填剤にモリブデン酸亜鉛を担持させたものであることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項6】 請求項1乃至5のいずれか1項記載のエポキシ樹脂組成物の硬化物にて封止された半導体装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、難燃性、高温特性に優れ、ハロゲン化エポキシ樹脂、 $Sb_2O_3$  (三

酸化アンチモン)等のアンチモン化合物を含有しない硬化物を与える半導体封止用エポキシ樹脂組成物及びその硬化物で封止された半導体装置に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】

現在、半導体デバイスは樹脂封止型のダイオード、トランジスター、IC、LSI、超LSIが主流であるが、エポキシ樹脂が他の熱硬化性樹脂に比べ成形性、接着性、電気特性、機械特性、耐湿性等に優れているため、エポキシ樹脂組成物で半導体装置を封止することが一般的である。半導体デバイスは、家電製品、コンピューター等、我々の生活環境のあらゆる所で使用されている。そのため万が一の火災に備えて、半導体封止材は耐燃性が要求されている。

## 【0003】

従来のエポキシ樹脂組成物中には、耐燃性を高めるため、一般にハロゲン化エポキシ樹脂と三酸化アンチモンとが配合されている。このハロゲン化エポキシ樹脂と三酸化アンチモンとの組み合わせは、気相においてラジカルトラップ、空気遮断効果が大きく、その結果、高い難燃効果が得られるものである。

## 【0004】

しかし、高温での環境下ではハロゲン化合物やアンチモン酸化物が分解し、金線とアルミニウム配線の接続部で化学反応を起こし、接続部の抵抗が大きくなったり、断線に至ったり、動作不良を引き起こす原因となる。更にハロゲン化エポキシ樹脂は燃焼時に有毒ガスを発生するという問題があり、また、三酸化アンチモンにも粉体毒性があるため、人体、環境に対する影響を考慮すると、これらの難燃剤を樹脂組成物中に全く含まないことが好ましい。

## 【0005】

このような要求に対して、ハロゲン化エポキシ樹脂あるいは三酸化アンチモンの代替として、従来から $Al(OH)_3$ 、 $Mg(OH)_2$ 等の水酸化物、リン系難燃剤等の検討がなされてきている。しかし、いずれの化合物を使用しても、成形時の硬化性が悪くなったり、耐湿性が悪くなる等の問題点があり、実用化には至っていないのが現状である。

## 【0006】

本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、ハロゲン化エポキシ樹脂、三酸化アンチモン等のアンチモン化合物を含有せず、難燃性、高温特性に優れる半導体封止用エポキシ樹脂組成物及びその硬化物で封止された半導体装置を提供することを目的とする。

## 【0007】

## 【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】

本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意検討を行った結果、(A) エポキシ樹脂、(B) フェノール樹脂硬化剤、(C) モリブデン化合物、(D) 無機質充填剤を必須成分とするエポキシ樹脂組成物において、窒素原子を(A) エポキシ樹脂と(B) フェノール樹脂硬化剤の総量に対し、樹脂組成物中の窒素原子の含有量が1.5～20重量%である割合で含有させたものを使用することにより、該半導体封止用エポキシ樹脂組成物が、ハロゲン化エポキシ樹脂、三酸化アンチモン等のアンチモン化合物を含有しなくとも、難燃性かつ高温特性に優れた硬化物を与えることを見出し、本発明をなすに至ったものである。

## 【0008】

従って、本発明は、

- (A) エポキシ樹脂、
- (B) フェノール樹脂硬化剤、
- (C) モリブデン化合物、
- (D) 無機質充填剤

(A)、(B)成分の合計量100重量部に対して300～900重量部を必須成分とするエポキシ樹脂組成物において、窒素原子を、(A) エポキシ樹脂と(B) フェノール樹脂硬化剤の総量に対し樹脂組成物中の窒素原子の含有量が1.5～20重量%である割合で含有させることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物及びその硬化物にて封止された半導体装置を提供する。

## 【0009】

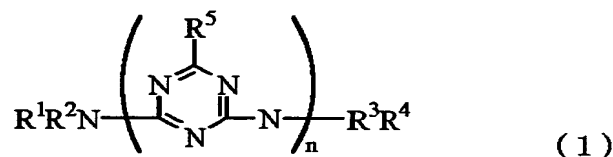
以下、本発明につき更に詳しく説明する。

本発明に用いる(A) エポキシ樹脂は、分子中に少なくとも2個のエポキシ基を有する公知のエポキシ樹脂、例えばフェノールノボラック型エポキシ樹脂、ク

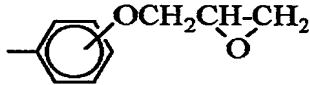
レゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂、トリフェノールアルカン型エポキシ樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル骨格含有アラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、複素環型エポキシ樹脂、ナフタレン環含有エポキシ樹脂、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂及び下記式(1)、(2)、(3)に示す樹脂骨格中に窒素原子をメラミン骨格、グアナミン骨格、シアヌル酸エステル骨格等のトリアジン環構造などの形で含むエポキシ樹脂等が挙げられ、これらのうち1種又は2種以上を併用することができる。なお、樹脂骨格中に窒素原子を含むエポキシ樹脂はこれらに限定されるものではない。

【0010】

【化1】

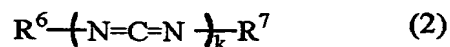


(式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$ 、 $\text{R}^5$ は水素原子、アミノ基、1価のフェニルグリ

シジルエーテル残基(即ち、)、及び1個の結合手(単結合手)を有するエポキシ樹脂から選ばれ、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$ 、 $\text{R}^5$ の少なくとも1つは、1価のフェニルグリシジルエーテル残基又は1個の結合手を有するエポキシ樹脂である。 $n$ は1以上の整数であり、好ましくは1~10、更に好ましくは1~5である。)

【0011】

【化2】



(式中、 $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^7$ は水素原子、炭素数1~10のアルキル基、1価のフェニルグリシジルエーテル残基、1個の結合手(単結合手)を有するエポキシ樹脂、及び1個の結合手(単結合手)を有する熱可塑性樹脂から選ばれ、 $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^7$ の少なくとも1つは1価のフェニルグリシジルエーテル残基又は1個の結合手を有するエ



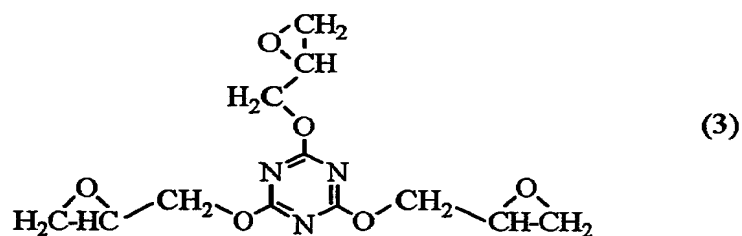
ポキシ樹脂である。kは1以上の整数であり、通常、1～300、好ましくは5～250、更に好ましくは30～250である。)

## 【0012】

ここで、式(1)，(2)において、1個の結合手(単結合手)を有するエポキシ樹脂としては、1個の結合手(単結合手)を有するフェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、トリフェノールアルカン型エポキシ樹脂、ビフェニル骨格含有フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、複素環型エポキシ樹脂、ナフタレン環含有エポキシ樹脂等のエポキシ樹脂が挙げられ、1個の結合手を有する熱可塑性樹脂としては1個の結合手を有するポリエーテル、ポリエステル、ポリメタクリル酸メチル、ポリスチレン、ポリブタジエン、ポリメタクリル酸メチル-ポリブタジエン-ポリスチレン共重合体等の熱可塑性樹脂が挙げられる。

## 【0013】

## 【化3】



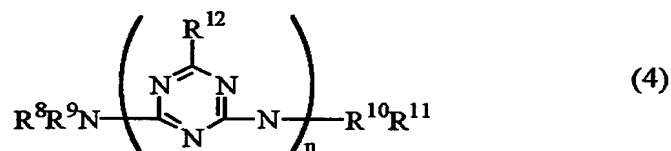
## 【0014】

一方、本発明に用いる(B)フェノール樹脂硬化剤としては、例えばフェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂等のノボラック型フェノール樹脂、ナフタレン型フェノール樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、トリフェノールアルカン型フェノール樹脂、ビフェニル骨格含有アラルキル型フェノール樹脂、ビフェニル型フェノール樹脂、脂環式フェノール樹脂、複素環型フェノール樹脂、ナフタレン環含有フェノール樹脂、ビスフェノールA型樹脂、ビスフェノールF型樹脂等のビスフェノール型フェノール樹脂及び以下に示すような式(4)，

(5), (6) の窒素原子をメラミン骨格、グアニミン骨格、シアヌル酸エステル骨格等のトリアジン環構造などの形で含むフェノール樹脂硬化剤等が挙げられ、これらのうち1種又は2種以上を併用することができる。なお、樹脂骨格中に窒素原子を含むフェノール樹脂はこれらに限定されるものではない。

【0015】

【化4】



(式中、 $\text{R}^8$ ,  $\text{R}^9$ ,  $\text{R}^{10}$ ,  $\text{R}^{11}$ ,  $\text{R}^{12}$ は水素原子、アミノ基、1価のフェノール(即ち、o-, m-又はp-のヒドロキシフェニル基)、及び1個の結合手(単結合手)を有するフェノール樹脂から選ばれ、 $\text{R}^8$ ,  $\text{R}^9$ ,  $\text{R}^{10}$ ,  $\text{R}^{11}$ ,  $\text{R}^{12}$ の少なくとも1つは1価のフェノール又は1個の結合手(単結合手)を有するフェノール樹脂である。nは1以上の整数であり、好ましくは1~10、更に好ましくは1~5である。)

【0016】

【化5】



(式中、 $\text{R}^{13}$ ,  $\text{R}^{14}$ は水素原子、炭素数1~10のアルキル基、1価のフェノール(即ち、o-, m-又はp-のヒドロキシフェニル基)、1個の結合手(単結合手)を有するフェノール樹脂、及び1個の結合手(単結合手)を有する熱可塑性樹脂から選ばれ、 $\text{R}^{13}$ ,  $\text{R}^{14}$ の少なくとも1つは1価のフェノール又は1個の結合手を有するフェノール樹脂である。kは1以上の整数であり、通常、1~300、好ましくは5~250、更に好ましくは30~250である。)

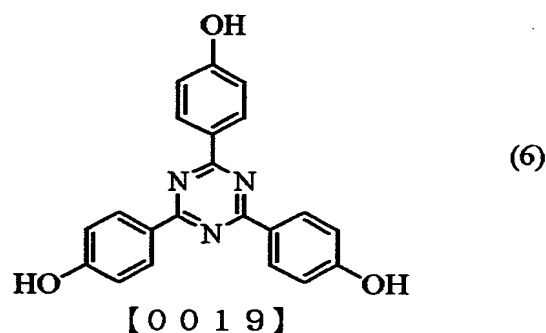
【0017】

ここで、式(4), (5)において、1個の結合手(単結合手)を有するフェノール樹脂としては、1個の結合手を有するフェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂等のノボラック型フェノール樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、トリフェノールアルカン型フェノール樹脂、ビフェニル骨格含有アラルキ

ル型フェノール樹脂、ビフェニル型フェノール樹脂、ビスフェノール A 型樹脂、ビスフェノール F 型樹脂等のビスフェノール型フェノール樹脂、脂環式フェノール樹脂、複素環型フェノール樹脂、ナフタレン環含有フェノール樹脂等のフェノール樹脂が挙げられ、1 個の結合手（単結合手）を有する熱可塑性樹脂としては、1 個の結合手を有するポリエーテル、ポリエステル、ポリメタクリル酸メチル、ポリスチレン、ポリブタジエン、ポリメタクリル酸メチル-ポリブタジエン-ポリスチレン共重合体等の熱可塑性樹脂が挙げられる。

【0018】

【化 6】



(B) フェノール樹脂硬化剤の配合量は、特に制限されないが、(A) エポキシ樹脂中に含まれるエポキシ基 1 モルに対して、(B) フェノール樹脂硬化剤中に含まれるフェノール性水酸基のモル比が 0.5～1.4、特に 0.8～1.2 であることが好ましい。

【0020】

フェノール樹脂硬化剤中に含まれる窒素原子の大部分は、1 級、2 級又は 3 級アミンの形で存在しており、エポキシ樹脂中のエポキシ基と反応する。一般にフェノール性水酸基よりもアミンの方が反応性が高く、また、温度が高いほど反応が促進されるため、高温で組成物の溶融混合処理を行った場合、溶融混合処理中に硬化反応してしまうおそれがある。したがって、樹脂骨格中に窒素原子を含有するフェノール樹脂硬化剤を配合する組成物は、低温で溶融混合処理することが重要である。アミンとエポキシの反応を抑えるためには溶融混合処理の温度が 120℃以下、望ましくは 100℃以下である。すなわち樹脂骨格中に窒素原子を含むエポキシ樹脂及び／又はフェノール樹脂硬化剤の軟化点は 120℃以下、更

には100℃以下であることが望ましい。

【0021】

本発明のエポキシ樹脂組成物中の窒素原子の含有量（特には、（A）成分と（B）成分との合計中の窒素原子の含有量）としては、（A）エポキシ樹脂と（B）フェノール樹脂硬化剤の総量に対し、1.5～20重量%である。1.5重量%未満では十分な難燃効果が得られず、20重量%を超えると粘度の増加により成形性が悪くなる。また、耐湿性、保存安定性も低下する。より好ましくは1.5～15重量%、特に好ましくは2～8重量%である。

【0022】

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、（C）モリブデン化合物を含有する。モリブデン化合物はプラスチック燃焼時の減煙効果、及び炭化層生成促進作用があることが知られている。従来、モリブデン化合物は、三酸化アンチモン同様、ハロゲン化エポキシ樹脂と併用して用いられており、ポリオルガノシロキサンとの併用により難燃性が得られる。また、モリブデン化合物には三酸化アンチモンのような粉体毒性は認められず、極めて安全な難燃剤である。

【0023】

本発明に用いられるモリブデン化合物としては、例えばホウ化モリブデン、2ケイ化モリブデン、モリブデンアセチルアセトナート、酸化モリブデン（IV）、酸化モリブデン（V）、酸化モリブデン（VI）、モリブデン酸亜鉛、モリブデン酸炭酸カルシウム、モリブデン酸カルシウム等のモリブデン酸化物、モリブデンホウ化物、モリブデンケイ化物、モリブデンエステル化物、モリブデン酸塩やこれらのモリブデン化合物を無機質充填剤に担持させたものなどが挙げられる。これらの中でもエポキシ樹脂の硬化性に影響を及ぼさない化合物としてモリブデン酸亜鉛が好ましく、特には、無機質充填剤に担持させたモリブデン酸亜鉛が好ましい。

【0024】

この場合、十分な難燃効果を得るためには、モリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物をエポキシ樹脂組成物中に均一に分散させる必要がある。分散性を向上させるために、予めモリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物をシリカ、タルク等の

無機質充填剤に担持させて使用することが望ましい。モリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物を担持させる無機質充填剤としては、球状又は破砕状の溶融シリカ、結晶性シリカ等のシリカ類、タルク、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、ボロンナイトライド、酸化チタン、ガラス繊維等が挙げられる。この場合、モリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物担持粉体の平均粒径としては0.1~40 $\mu\text{m}$ 、望ましくは0.2~15 $\mu\text{m}$ 、より望ましくは0.5~5 $\mu\text{m}$ 、比表面積(BET吸着法)は0.5~50 $\text{m}^2/\text{g}$ 、望ましくは0.7~10 $\text{m}^2/\text{g}$ である。

## 【0025】

なお、本発明において、この平均粒径は、例えばレーザー光回折法等による重量平均値(又はメディアン径)等として求めることができる。

## 【0026】

また、無機質充填剤にモリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物を担持させた難燃剤中のモリブデン化合物の含有量は、通常、2~50重量%、好ましくは5~40重量%、特に10~30重量%であることが好ましい。モリブデン化合物の含有量が少なすぎると十分な難燃効果が得られない場合があり、また多すぎると成形時の流動性、硬化性が低下する場合がある。

## 【0027】

このようなモリブデン酸亜鉛担持無機質充填剤としては、例えばSHERWIN-WILLIAMS社のKEMGARD 1260, 1261, 1270, 1271, 911C等のKEMGARDシリーズなどが挙げられる。

## 【0028】

上記(C)成分、特に上記モリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物を無機質充填剤に担持させた難燃剤の配合量は適宜選定されるが、(A)エポキシ樹脂と(B)フェノール樹脂硬化剤の総量100重量部に対して5~50重量部が好ましい。この場合、難燃剤中のモリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物自体の配合量(なお(C)成分としてモリブデン化合物を無機質充填剤に担持させることなくそのまま配合する場合には、該モリブデン化合物自体の配合量)は、(A)エポキシ樹脂と(B)フェノール樹脂硬化剤との総量100重量部に対して0.3~

20重量部、特に0.6~10重量部、とりわけ0.8~10重量部であることが好ましい。配合量が少なすぎると十分な難燃効果が得られず、多すぎると得られる組成物の流動性、硬化特性の低下を引き起こすおそれがある。

#### 【0029】

本発明のエポキシ樹脂組成物中に配合される(C)成分以外の無機質充填剤(D)成分)としては、通常エポキシ樹脂組成物に配合されるものを使用することができる。例えば、球状又は破碎状の溶融シリカ、結晶性シリカ等のシリカ類、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、ボロンナイトライド、酸化チタン、ガラス繊維等が挙げられる。なお、これら無機質充填剤の平均粒径や形状は特に限定されないが、通常は平均粒子径が0.5~40 $\mu$ m、特には1~20 $\mu$ m程度のものが好ましく、特に球状の溶融シリカが好適に使用される。

#### 【0030】

(D)無機質充填剤の添加量としては、(A)エポキシ樹脂と(B)フェノール樹脂硬化剤の総量100重量部に対して、300~900重量部が望ましい。300重量部未満では十分な難燃効果が得られず、900重量部より多いと、流動性の低下を引き起こす。

#### 【0031】

なお、本発明に用いられる無機質充填剤は、樹脂と無機質充填剤との結合強度を強くするため、シランカップリング剤、チタネートカップリング剤などのカップリング剤で予め表面処理したものを配合することが好ましい。

#### 【0032】

このようなカップリング剤としては、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン等のエポキシ官能性基含有アルコキシシラン、N- $\beta$ (アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノ官能性基含有アルコキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトトリメトキシシラン等のメルカプト官能性基含有アルコキシシランなどのシランカップリング剤を用いることが好ましい。ここで、表面処理に用いるカップ

リング剤配合量及び表面処理方法については特に制限されるものではない。

【0033】

本発明において、(A) エポキシ樹脂と (B) 硬化剤との硬化反応を促進させるため、硬化促進剤を用いることが好ましい。この硬化促進剤は、硬化反応を促進させるものであれば特に制限されず、例えば、トリフェニルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリ (p-メチルフェニル) ホスフィン、トリ (ノニルフェニル) ホスフィン、トリフェニルホスフィン・トリフェニルボラン、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレートなどの有機リン系化合物、トリエチルアミン、ベンジルジメチルアミン、 $\alpha$ -メチルベンジルジメチルアミン、1, 8-ジアザビシクロ [5. 4. 0] ウンデセン-7などの第3級アミン化合物、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾールなどのイミダゾール化合物等を使用することができる。

【0034】

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、更に必要に応じて、各種の添加剤を配合することができる。例えば窒素原子含有熱可塑性樹脂、窒素原子含有熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、熱可塑性エラストマー、有機合成ゴム等の低応力化剤、カルナバワックス、高級脂肪酸、合成ワックス等のワックス類、カーボンブラック等の着色剤、ハロゲントラップ剤等の添加剤を添加配合することができる。

【0035】

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を成形材料として調製する場合の一般的な方法としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂硬化剤、モリブデン化合物、無機質充填剤、その他の添加物を所定の組成比で配合し、これをミキサー等によって十分均一に混合した後、熱ロール、ニーダー、エクストルーダー等による熔融混合処理を行い、次いで冷却固化させ、適当な大きさに粉碎して成形材料とすることができる。

【0036】

このようにして得られた成形材料は、各種の半導体装置の封止用に有効に利用することができる。この場合、半導体装置の最も一般的な封止方法としては、低

圧トランスファー成形法が挙げられる。なお、上記半導体封止用エポキシ樹脂組成物の成形条件は、150～180℃で30～180秒とすることが好ましく、この後硬化は、150～180℃で2～16時間行うことが望ましい。

#### 【0037】

##### 【発明の効果】

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、難燃性、高温特性に優れる硬化物を与えることができるものであり、しかもハロゲン化エポキシ樹脂、三酸化アンチモン等のアンチモン化合物といった有害物質を樹脂組成物中に含有しないので、人体・環境に対する悪影響がないものである。

#### 【0038】

##### 【実施例】

以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。なお、下記の例において部は重量部を示す。

#### 【0039】

##### 【実施例1～6、比較例1～3】

表1に示す成分を熱2本ロールにて均一に熔融混合し、冷却、粉碎して半導体封止用エポキシ樹脂組成物を得た。

#### 【0040】

これらの組成物につき、下記方法によりその性能を評価した。結果を表2に示す。

##### 《スパイラルフロー値》

EMMI規格に準じた金型を使用して、成形温度175℃、成形圧力6.86MPa、成形時間90秒の条件で成形し、測定した。

##### 《成形硬度》

JIS-K6911に準じて成形温度175℃、成形圧力6.86MPa、成形時間90秒の条件で10×4×100mmの棒を成形したときの熱時硬度をバーコール硬度計で測定した。

##### 《難燃性》



UL-94規格に基づき、1/16インチ厚の板を成形し、難燃性を調べた。

### 《高温特性》

シリコンチップ上にアルミ配線を形成した模擬素子と部分金メッキされた42アロイリードフレームとを、太さ30 $\mu$ mの金線でボンディングし、成形温度175℃、成形圧力6.86MPa、成形時間120秒の条件で14pinDIPを成形した。180℃、4時間ポストキュアしたものを200℃の乾燥機に500時間放置した後、樹脂硬化物を発煙硝酸で溶かし、チップ側のボンディング部の引張り強度を測定した。この引張り強度の値が初期値の50%以下になったものを不良とした。

【0041】

【表1】

成分 (重量部)	実施例						比較例		
	1	2	3	4	5	6	1	2	3
エポキシ樹脂(イ)	57.6	57.6	45.9	45.9	57.8	57.4	58.2	41.1	54.4
硬化剤(ロ)	21.2	21.2	-	-	-	-	16.7	-	-
硬化剤(ハ)	-	-	54.1	54.1	-	-	-	58.9	-
硬化剤(ニ)	-	-	-	-	42.2	-	-	-	-
硬化剤(ホ)	-	-	-	-	-	42.7	-	-	-
硬化剤(ヘ)	21.2	21.2	-	-	-	-	25.1	-	39.4
窒素含有量*	1.7	1.7	19	19	3.4	5.1	1.3	21	0
無機質充填剤	500	695	500	695	600	600	500	500	500
硬化促進剤	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
KEMGARD1261	50	5	50	5	20	20	50	50	-
難燃剤中のトリフェノール酸亜鉛自体の配合量	9	0.9	9	0.9	3.6	3.6	9	9	-
三酸化アンチモン	-	-	-	-	-	-	-	-	4
臭素化ノボラック型エポキシ樹脂	-	-	-	-	-	-	-	-	6.2
離型剤	3	3	3	3	3	3	3	3	3
カーボンブラック	2	2	2	2	2	2	2	2	2
シリコンカップリング剤	1	1	1	1	1	1	1	1	1

【0042】

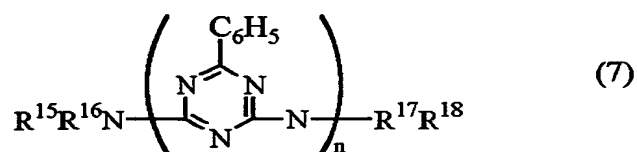
\* (A) 成分のエポキシ樹脂と (B) 成分のフェノール樹脂硬化剤の総量に対して組成物全体に含有されている窒素原子の含有割合 (重量%)

エポキシ樹脂 (イ) : オークレゾールノボラック型エポキシ樹脂 ; EOCN1020-55 (日本化薬 (株) 製、エポキシ当量200)

硬化剤 (ロ) : 下記式 (7) で表されるベンゾグアナミン骨格を含有するフェノ

ールノボラック樹脂（窒素原子含有率 8 重量%，軟化点 94℃，フェノール性水酸基当量 130）

【化 7】



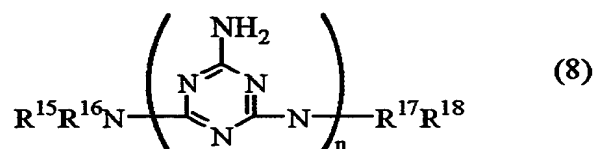
（式中、 $\text{R}^{15}$ 、 $\text{R}^{16}$ 、 $\text{R}^{17}$ 、 $\text{R}^{18}$ は水素原子もしくは 1 個の単結合手を有するフェノールノボラック樹脂であり、 $\text{R}^{15}$ 、 $\text{R}^{16}$ 、 $\text{R}^{17}$ 、 $\text{R}^{18}$ の少なくとも 1 つは 1 個の単結合手を有するフェノールノボラック樹脂である。 $n$ はそれぞれ（ロ），

（ハ）のフェノール性水酸基当量を満足する 1～10 の整数である。）

硬化剤（ハ）：式（7）で表されるベンゾグアナミン骨格を含有するフェノールノボラック樹脂（窒素原子含有率 35 重量%，軟化点 127℃，フェノール性水酸基当量 165）

硬化剤（ニ）：下記式（8）で表されるメラミン骨格を含有するフェノール樹脂（窒素原子含有率 8 重量%，軟化点 90℃，フェノール性水酸基当量 117）

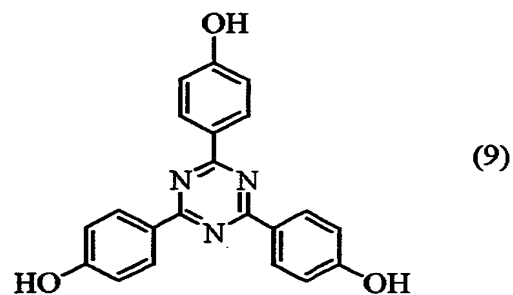
【化 8】



（式中、 $\text{R}^{15}$ 、 $\text{R}^{16}$ 、 $\text{R}^{17}$ 、 $\text{R}^{18}$ は水素原子もしくは 1 個の単結合手を有するフェノールノボラック樹脂であり、 $\text{R}^{15}$ 、 $\text{R}^{16}$ 、 $\text{R}^{17}$ 、 $\text{R}^{18}$ の少なくとも 1 つは 1 個の単結合手を有するフェノールノボラック樹脂である。 $n$ は上記フェノール性水酸基当量を満足する 1～10 の整数である。）

硬化剤（ホ）：下記式（9）で表されるフェノール樹脂（窒素原子含有率 12 重量%，軟化点 119℃，水酸基当量 119）

## 【化9】



硬化剤（へ）：フェノールノボラック樹脂 DL-92（明和化成（株）製 水酸基当量110）

KEMGARD1260：モリブデン酸亜鉛担持無機質充填剤（SHERWIN-WILLIAMS製 コア材：球状シリカ；平均粒径0.5 $\mu$ m，比表面積5.5m<sup>2</sup>/g） モリブデン酸亜鉛担持量18重量%

無機質充填剤：球状溶融シリカ（（株）龍森製，平均粒径15 $\mu$ m）

硬化促進剤：トリフェニルホスフィン（北興化学（株）製）

離型剤：カルナバワックス（日興ファインプロダクツ（株）製）

シランカップリング剤： $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン KBM403（信越化学工業（株）製）

## 【0043】

【表2】

	実施例						比較例				
	1	2	3	4	5	6	1	2	3	4	5
スハ <sup>*</sup> イラフロー(cm)	70	80	73	70	85	80	83	35	70	80	80
成形性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	NG	NG	OK	OK
成形硬度	75	78	78	82	82	85	73	90	35	85	85
難燃性	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	燃焼	V-0	V-0	燃焼	V-0
高温特性	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	0/20	13/20

## 【0044】

表2の結果より、本発明のエポキシ樹脂組成物は、難燃性、高温特性に優れたエポキシ樹脂組成物を与えることが可能である。しかもハロゲン化エポキシ樹脂、三酸化アンチモンを樹脂組成物中に含有しないので、人体・環境に対する悪影響もないものである。

【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 (A) エポキシ樹脂、

(B) フェノール樹脂硬化剤、

(C) モリブデン化合物、

(D) 無機質充填剤

(A)、(B)成分の合計量100重量部に対して300～900重量部を必須成分とするエポキシ樹脂組成物において、窒素原子を、(A)エポキシ樹脂と(B)フェノール樹脂硬化剤の総量に対し樹脂組成物中の窒素原子の含有量が1.5～20重量%である割合で含有させることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【効果】 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、難燃性、高温特性に優れた硬化物を与えることができるものであり、しかもハロゲン化エポキシ樹脂、三酸化アンチモン等のアンチモン化合物といった有害物質を樹脂組成物中に含有しないので、人体・環境に対する悪影響がないものである。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002060]

1. 変更年月日 1990年 8月22日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区大手町二丁目6番1号

氏 名 信越化学工業株式会社